## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

ting to consider the second contract of the second contract of the second contract of the second contract of t The second contract of the second contract of the second contract of the second contract of the second contract

2003-033776

(43)Date of publication of application: 04.02.2003

(51)Int.CI.

C02F 3/10 B01D 63/02 C02F 1/44 C02F 3/34 C12M 1/40 C12N 1/20 /(C12N 1/20 C12R 1:01 )

(21)Application number: 2001-222357

(71)Applicant: KURARAY CO LTD

(22)Date of filing:

24.07.2001

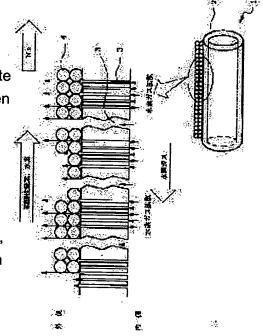
(72)Inventor: HATANAKA CHIAKI

HATATE YASUO HORIUCHI HAJIME

# (54) BIOREACTOR AND METHOD FOR WATER TREATMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method for treatment of water for processing into drinking water by the development of a bioreactor which can reduce nitrate nitrogen using an autotrophic bacteria to which hydrogen gas plays a role of hydrogen donor, and by which bacterial concentration in the reactor is elevated and nitrogen compounds can be decomposed efficiently. SOLUTION: Decomposition of nitrogen compounds in material water is carried out by the use of a bioreactor composed by modules bundled the bioreactor elements, that carry microorganisms including autotrophic bacteria surrounding hollow fibers, and a hydrogen supplying system.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

**BEST AVAILABLE COPY** 

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

## (19)日本国特許庁 (JP)

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2003-33776 (P2003-33776A)

(43)公開日 平成15年2月4日(2003.2.4)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>		識別記号	FΙ	•	テーマコード(参考)
C 0 2 F	3/10		C 0 2 F 3/10	) Z	4B029
B01D	63/02		B 0 1 D 63/02	<b>:</b>	4B065
C 0 2 F	1/44		C 0 2 F 1/44	D D	4 D 0 0 3
	3/34	101	3/34	101A	4 D 0 0 6
C 1 2 M	1/40		C 1 2 M 1/40	Z	4 D 0 4 0
			審査請求 未請求 請求項の数	数9 OL (全 11 頁)	最終頁に続く

(21)出願番号	特願2001-222357(P2001-222357)
(22)出顧日	平成13年7月24日(2001.7.24)

(71)出願人 000001085

株式会社クラレ

岡山県倉敷市酒津1621番地

(72)発明者 畑中 千秋

福岡県北九州市小倉南区守恒4丁目5番7

号

(72)発明者 幡手 泰雄

鹿児島県鹿児島市星ヶ峯4丁目20番11号

(74)代理人 100080791

弁理士 高島 一

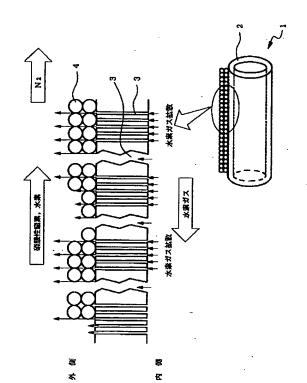
最終頁に続く

## (54) 【発明の名称】 バイオリアクター及び水処理方法

#### (57)【要約】

【課題】 水素ガスを水素供与体とする独立栄養性細菌を用いて硝酸性窒素を還元するバイオリアクターを開発し、処理槽内の微生物濃度の向上を実現して効率よく窒素化合物の分解処理を行うことのできる飲料原水処理方法を提供する。

【解決手段】 中空糸外側表面に独立栄養性細菌含む微生物を担持したバイオリアクター素子を束ねたモジュールおよび、水素ガス供給具を備えたバイオリアクターにより、原水中に含まれる窒素化合物の分解処理を行う。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 中空糸外表面に、水素ガスを水素供与体 として硝酸性窒素を窒素ガスに還元しうる独立栄養性細 菌、を固定化したバイオリアクター素子。

【請求項2】 中空糸外表面が、親水化処理を施されて いることを特徴とする請求項1記載のバイオリアクター 素子。

【請求項3】 親水化処理が、親水性素材による中空糸 外表面のコート処理である請求項2記載のバイオリアク ター素子。

【請求項4】 親水性素材がポリビニルアルコールであ る請求項3記載のバイオリアクター素子。

【請求項5】 請求項1ないし4のいずれかに記載のバ イオリアクター素子を含むモジュール。

【請求項6】 請求項5記載のモジュール、及び該モジ ュールへの水素ガス供給具、を備えたバイオリアクタ

【請求項7】 前記水素ガス供給具は前記中空糸の少な くとも内部に水素ガスを供給するものであることを特徴 とする請求項6記載のバイオリアクター。

【請求項8】 請求項6または7のいずれかに記載のバ イオリアクターを用いる水処理方法。

【請求項9】 水源からの原水から請求項6または7の いずれかに記載のバイオリアクターを用いる工程を含む 処理により浄水を製造する飲料原水処理方法。

### 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、硝酸性窒素を生物 学的に分解するバイオリアクター素子、当該バイオリア クター素子を含むモジュール、該モジュールを利用する 30 水処理装置 (バイオリアクター) 、及び該バイオリアク ターを用いて井水、河川水などに含まれる窒素化合物を 分解する飲料原水処理方法に関する。

#### [0002]

【従来の技術】地下水中の硝酸性窒素 (NO3-N)の 濃度が経年的な増加傾向にある。これらが飲料水中に多 く含まれると、血液中のヘモグロビンと結合してメトヘ モグロビンに変化し、これは酸素運搬能力を欠くためチ アノーゼ等の症状を呈する。窒素濃度の上昇の原因とし て、多量に施される化成窒素肥料や家畜の排泄物が地下 40 に浸透し、土壌中の硝化菌によって硝酸性窒素に酸化さ れることや酸性雨中の酸化窒素分が挙げられる。硝酸性 窒素の汚染は世界的規模の問題と考えられているが、日 本でも有数のお茶の産地や大規模畜産地域で深刻な社会 問題になっている。

【0003】地下水中の硝酸性窒素を除去する方法とし て物理化学的方法と生物学的処理法がある。物理化学的 方法としては、イオン交換樹脂法、RO(逆浸透)法、 ED(電気透析)法など提案されている。しかし、いず

中や濃縮排水中に高濃度の硝酸性窒素を含有するため、 その二次処理が問題となることが多いことや、処理コス トが高いことにより最適な方法とはいいがたい。

【0004】これに対し、生物学的処理法は、脱窒菌に より水中の硝酸性窒素を窒素ガスへ還元し、大気中に放 散除去する方法であるため二次的な処理は全く必要な い。生物学的処理法に用いる脱窒菌には、硝酸性窒素の 還元に必要な電子を有機化合物から得る細菌(本明細書 では従属栄養性細菌という)と、硝酸性窒素の還元に必 10 要な電子を水素ガスから得るので有機化合物を必要とし ない細菌(本明細書では独立栄養性細菌という)の二種 の細菌がある。このうち、従属栄養性細菌を用いる方法 では、硝酸性窒素の還元に必要不可欠な有機化合物が水 中のBOD (biochemical oxygen demand;生物化学的酸素要求量)、COD(ch emical oxygen demand;化学的酸 素要求量)を増加することになり、本来の目的に反し水 質を悪化させることになりかねない。したがって、有機 化合物を必要としない独立栄養性細菌を用いた生物学的 20 処理法の実用化が望まれる。

【0005】このような独立栄養性細菌を用いた生物学 的処理方法を行う水処理装置(バイオリアクター)の実 用化手段として、高分子のゲルビーズ中に菌体を包括固 定し、反応に必要なガスをバブリングにより供給する方 式(流動層型バイオリアクター)が提案されている。し かし、この方式には下記①~③の欠点があり、結果とし て硝酸性窒素の窒素ガスへの還元効率が低く、未だ実用 化されるには至っていない。

【0006】①この方式では、基質(硝酸性窒素を含む 被処理水)及び水素ガス等の物質移動において大きな流 動抵抗が存在すること。

②前記ゲルビーズの径を小さくするにも限界があり、水 処理装置(バイオリアクター)における独立栄養性細菌 の菌体濃度を大きくできないこと。

③この方式により水素ガスをバブリングしても、水素ガ スの水に対する溶解度は20℃で1.6mg/lと著し く低いので、独立栄養性細菌への水素ガスの供給効率が 極めて悪いこと。

#### [0007]

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記3点の 欠点を解消する、即ち流動抵抗を小さくし、独立栄養性 細菌を高濃度にして、水素ガスの供給効率を高める、こ とにより、硝酸性窒素を効率よく窒素ガスへ還元するバ イオリアクターを提供し、前記独立栄養性細菌を用いた 生物学的処理法を実用化することを目的とする。

## [0008]

【課題を解決するための手段】前記課題を達成するため に、発明者らは中空糸を使用することを検討し、以下の 構成を有する、バイオリアクター素子、モジュール、バ れも水中の硝酸性窒素を分離する方法であり、再生排水 50 イオリアクター、水処理方法を発明した。なお、本明細

書において「バイオリアクター」とは生物学的処理方法 を行う水処理装置を意味し、「モジュール」とはバイオ リアクターを構成する一群の中空糸の束を意味し、「バ イオリアクター素子」とはモジュールを構成する一本の 中空糸を意味する。

【0009】(1)中空糸外表面に、水素ガスを水素供 与体として硝酸性窒素を窒素ガスに還元しうる独立栄養 性細菌、を固定化したバイオリアクター素子。

- (2) 中空糸外表面が、親水化処理を施されていること を特徴とする前記(1)記載のバイオリアクター素子。
- (3) 親水化処理が、親水性素材による中空糸外表面の コート処理である前記(2)記載のバイオリアクター素 子。
- (4) 親水性素材がポリビニルアルコールである前記
- (3)記載のバイオリアクター素子。
- (5) 前記(1) ないし(4) のいずれかに記載のバイ オリアクター素子を含むモジュール。
- (6) 前記(5) 記載のモジュール、及び該モジュール への水素ガス供給具、を備えたバイオリアクター。
- 部に供給するものであることを特徴とする前記(6)記 載のバイオリアクター。
- (8) 前記(6) または(7) のいずれかに記載のバイ オリアクターを用いる水処理方法。
- (9) 水源からの原水から前記(6) または(7) のい ずれかに記載のバイオリアクターを用いる工程を含む処 理により浄水を製造する飲料原水処理方法。

## [0010]

【発明の実施の形態】図1(a)は本発明に係るバイオ リアクター素子の概念図であり、図1 (b) は図1

(a) におけるバイオリアクター素子の管壁部位の部分 拡大図である。バイオリアクター素子1は、細孔3を有 する中空糸2の外表面に、水素ガスを水素供与体とする 独立栄養性細菌を含む微生物4を担持することで、独立 栄養性細菌が中空糸2の外表面に固定化されたものであ

【0011】本発明で使用する中空糸2の材質としては 特に制限はなく、通常使用される高分子樹脂、例えばポ リビニルアルコール (PVA)、ポリオレフィン (例え ばポリエチレン)、ポリスルホン、PVAコートポリス 40 る。 ルホン、テフロン(登録商標)、セルロース等を使用す

$$2 \text{ NO}_3^{-} + 2 \text{ H}_2 \rightarrow 2 \text{ NO}_2^{-} + 2 \text{ H}_2 \text{ O} \cdots (1)$$

 $2 \text{ NO}_2$  +  $3 \text{ H}_2 \rightarrow \text{ N}_2 + 2 \text{ H}_2 \text{ O} + 2 \text{ OH}^2 \cdots (2)$ 

 $2 NO_3^- + 5 H_2 \rightarrow N_2 + 4 H_2 O + 2 O H^- \cdots (3)$ 

【0017】このような微生物を中空糸に担持する方法 も特に制限はなく、例えば、微生物が存在する水中に中 空糸を浸漬して、自然に中空糸表面に担持、馴養する方 法や、PVA水溶液などの親水化素材に微生物を混合 し、中空糸膜を浸漬して担持する方法などが挙げられ

ることができる。

【0012】ポリエチレン、ポリスルホン、テフロン (登録商標) など疎水性の素材の中空糸を使用する場合 には、該中空糸表面に親水化処理を施すことが、①被処 理水との親和性向上、②独立栄養性細菌の固定化の強 化、の点から望ましい。 ② については、前述した中空糸 2への独立栄養性細菌の固定化に用いる前記微生物4の 表面は親水性物質で覆われているので、中空糸2の表面 を親水性にすることで微生物4の担持が強固になること 10 による。

【0013】中空糸表面に親水化処理を施す方法には特 に制限はなく、PVAのような親水性素材でコートした り、PVAとブレンドして中空糸を作製したり、中空糸 2の素材表面に低温プラズマ処理によりアミノ基、カル ボキシル基、水酸基等の親水性基を導入して表面を改質 する方法があげられる。本発明においては処理のし易 さ、前記微生物との親和性の高さの点から、PVAで中 空糸の素材表面をコートすることが好ましい。なお、独 立栄養性細菌の固定化をさらに強固にするために、PV (7) 前記水素ガス供給具は前記中空糸の少なくとも内 20 A等の親水性高分子で覆い凍結固定化 (例えば、微生物 4を含むPVA水溶液に中空糸2を浸漬した後に水を切 って-25℃にて凍結乾燥処理を行う、等) するのがよ り好ましい。

> 【0014】本発明における独立栄養性細菌とは、前述 したように、硝酸性窒素の還元に必要な電子を有機化合 物から得ず、水素ガスから得る細菌であれば特に制限は ない。このような細菌として、Pseudomonas 属(例えばPseudomonas fluoresc ens)、Alcaligenes属(例えばAlca 30 ligenes denitrificans), Pa racoccus属 (例えばParacoccus d enitrificans) などが知られているが、本 発明で使用する細菌としては、特にParacoccu s denitrificansが望ましい。

【0015】独立栄養性細菌は以下の式(1)~(3) によって、硝酸性窒素から、分子状窒素への還元を行 う。このとき、電子源として有機化合物は全く必要ない ので、処理水中のBOD、CODが上昇する危険は全く なく、余剰汚泥発生量も少ないという長所を持ってい

[0016]

る。

【0018】本発明に係るバイオリアクター素子1を構 成する中空糸2の形状は、図1に示すような中空の筒 (特に円筒) であって、中空部から外側表面に向かって 50 気体が浸透し得る細孔3を有するものである。中空糸2

の外径は $0.5 \, \mathrm{mm} \sim 5 \, \mathrm{mm}$ 、好ましくは $0.7 \sim 3 \, \mathrm{m}$  mである。これは、外径が大きいほど中空糸の引っ張り強さなどの物性保持に優れることと、外径が小さいほど単位体積あたりの表面積が大きくなりコンパクト性に優れることによる。中空糸2の内径は破裂強さやガスの透過効率の点から、外径 $00.2 \sim 0.8 \, \mathrm{e}$  特に $0.4 \sim 0.7 \, \mathrm{e}$  であることが望ましい。また、細孔3の直径は細菌の固定の強さや $H_2$ の透過性の点から $5 \sim 1000 \, \mathrm{mm}$ 、特に $10 \sim 5000 \, \mathrm{nm}$ であることが好ましい。

【0019】本発明に係るバイオリアクター素子を構成する中空糸一本の外径は0.5mm~5mm程度と非常に細くできるため、硝酸性窒素を含む被処理水及び水素ガス等の物質移動における流動抵抗を小さくすることができる。また、単位体積あたりの表面積もゲルビーズの場合より1桁以上高いことからバイオリアクター中の菌体濃度を高くすることが可能となる。

【0020】さらに、水素ガス供給の点においても、中空糸内部から水素ガスを拡散によって表面の菌体へ供給する方式が可能となるため、水素分圧を従来のバブリン 20 が法の10倍以上に高めることができる。これらの作用があいまって、硝酸性窒素の窒素ガスへの還元反応の著しい高効率化が達成されうる。

【0021】本発明に係るモジュールについて、図2〜図8を用いて説明する。本発明に係るモジュール5は、前述のバイオリアクター素子1を固定部6などを用いて束ねたものである。図2(a)〜図8(a)はそれぞれ本発明に係るモジュールの概念図であり、図2(b)〜図8(b)はそれぞれ図2(a)〜図8(a)におけるI-1断面図である。

【0022】モジュール5を構成するバイオリアクター 素子1は、処理槽の大きさに応じて任意の長さをとれる が、バイオリアクター素子1の表面積を大きくして効率 をあげる点から0.3m以上が好ましく、より好ましく は0. 5 m以上であり、バイオリアクター素子1が運転 中にもつれたり、絡んだりして破損しにくいようにする 点から3m以下、特に2mであることが好ましい。バイ オリアクター素子1を束ねる固定部6の材質としては特 に制限はなく、通常用いられる高分子樹脂(例えば、エ ポキシ系樹脂、ウレタン系樹脂、シリコーン系樹脂)を 40 用いることができる。モジュール5を作製する際の、バ イオリアクター素子1の束ね方としては、図2 (a)、 図5 (a)、図6 (a)、図7 (a)、図8 (a) のよ うにすべてのバイオリアクター素子1の両端を二つの固 定部6で固定してもよいし、片端部のみ固定して他端は 中空糸同士が離れた構造 (図3 (a)) にしてもよい。 また、図4 (a) のように片端の固定部6は複数に分割 されていてもよい。また、モジュールの端部について は、固定部6に穴のない封止構造(図2(b))でもよ

ように固定部6に孔7が開いていたり、図6(b)のようにバイオリアクター素子1が固定部6を貫通している方が好ましい。さらにバイオリアクター1の配置としては、図6(b)のように均一にまとめた形状でもよいが、バイオリアクター素子が密集しない配置にした方が被処理水の流動抵抗がより小さくなり、処理効率のさらなる向上が期待できる点で好ましい。一例として、図7(b)のように中空糸を櫛歯状に配列した構造をあげるが、バイオリアクター素子が密集しなければどんな形態をとってもよい。同じ理由から、バイオリアクター素子を一列に並べた図8(b)のシート状構造も好ましい一形態である。

【0023】本発明に係るバイオリアクターは、図9に 示すように、前記モジュール5と、該モジュール5に水 素ガスを供給する管などの水素供給具8を備えたもので ある。図9のように処理槽9に一つのモジュール5を配 置してバイオリアクター10を構成しても、複数のモジ ュール5を配置してバイオリアクター10を構成しても よい。モジュール5は図9のように、モジュール5を多 数の孔を有する筒状の容器(保護筒11)に組み込んで 処理槽9に配置したほうが、図10のように処理槽9に 直接配置するよりも、モジュール運搬時の保護、バイオ リアクター素子同士の動きを抑制することによる絡みの 防止、被処理水の流れの制御等の観点から好ましい。保 護筒11はモジュール5の全部あるいは一部を覆ってい ればよく、また、筒の大きさ、長さ、形、柔軟性、開孔 部の有り無し、開口部の形状、開口部の位置、開口部の 数などは自由に選択できる。材質は、ポリエチレン、ポ リプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリスルホン、ポリエ 30 ステル、ナイロン等から選択できるが、これらに制限さ れるものではない。

【0024】水素供給具8はモジュール5に水素ガスを供給するものであるが、その形態は任意であり、図9のようなモジュール5の下方へ管を敷設する方法に限られず、図10のようにモジュール5の上方と下方の両方に管を敷設する方法などの形態をとることもできる。水素供給具8は前記中空糸の少なくとも内部に水素ガスを供給するものであることが望ましい。「0020」で述べたように、バイオリアクター素子の中空糸内部に水素ガスを供給すると水素分圧が高まり、独立栄養性細菌の増殖が促進し、かつ、上述の式(「0016」)の硝酸性窒素から窒素ガスへの還元反応も促進するので、本発明をより実効あらしめることができるからである。ここで、水素ガスは、中空糸の少なくとも内側に供給すればよく、例えば中空糸の内側と外側への供給を併用することもできる。

よく供給できる。結果として硝酸性窒素の窒素ガスへの 変換効率を高めることができる。これにより、本発明の 主目的である、水素ガスを水素供与体とする独立栄養性 細菌を用いた、水素ガスで硝酸性窒素を還元するバイオ リアクターを実用化することができる。

【0026】図11は、本発明に係る水処理方法を実施する水処理施設の一例の概念図である。被処理水はバイオリアクター10、ろ過装置、殺菌槽を順に通過して飲料水として使用される。

【0027】図11の水処理施設には三つのモジュール 105からなるバイオリアクター10を有するが、モジュールの数には特に制限はない。バイオリアクター10では前述した式(「0016」)の反応により、原水中に含まれた硝酸性窒素が窒素ガスに還元され、原水中から放出される。このとき、被処理水のPHは、式1の反応によりアルカリ側にシフトする。このため、酸の添加等により被処理水をPH5.8~8.6、好ましくは7.0~8.0の間にPH調整することもできる。

【0028】バイオリアクター10で窒素が除去された被処理水は、続いて、ろ過装置、殺菌槽を通過する。ろ 20 過装置では砂ろ過装置や膜ろ過装置などにより被処理水中の微粒子を除去する。殺菌槽では次亜塩素酸ソーダなどにより病原菌を死滅させる。この一連の処理により処理水は衛生的で安全性を高めた飲料水として使用される。

【0029】本発明に係る水処理方法では、ろ過装置、 殺菌槽による処理は必須ではなく、逆にその他の処理装置、例えばBOD成分除去装置、アンモニア性窒素の硝化装置、活性炭吸着器、オゾン処理装置、凝集剤による 凝集処理装置、沈殿又は加圧浮上による懸濁物質分離処 30 理装置などを付加してもよい。また、各処理の順序も任意であり、図11のように各処理を1回ずつ行ってもよいし、ろ過装置からバイオリアクター10に至る循環ラインを設けて各処理を複数回行ってもよい。

【0030】図11に示した処理施設においては、バイオリアクター10において原水中の硝酸性窒素を効率よく窒素ガスに還元して放出することができる。また、バイオリアクター10では前述のように独立栄養性細菌の濃度を高めて効率よく硝酸性窒素を還元できるので、バイオリアクター10の容積を縮小することができる。

【0031】以上、本発明を幾つかの実施の形態を参照して説明してきたが、本発明は何ら上述した実施の形態に記載の構成に限定されるものでなく、特許請求の範囲に記載されている事項の範囲内で考えられるその他の実施の形態や変形例も含むものである。例えば、水処理装置に中空糸は縦方向を向けて配置したが横方向を向けて配置することも可能である。

### [0032]

【実施例】[実施例]本発明に係るバイオリアクターの効 空糸 2 に担持された細菌が馴致するのに要する其 果を図10に示したバイオリアクターを用いて、図12 50 り、14日経過以降、脱窒率は一定に保たれた。

に示す実験装置を使用して調べた。この装置のバイオリアクター10(容量3リットル)は水素ガスを水素源として硝酸性窒素の還元反応を行う独立栄養性細菌(Paracoccus denitrificans)を凍結乾燥法により担持したPVAコートポリスルホン膜((株)クラレ製、クラレSFフィルター(8028A))からなる中空糸2(直径1mm、長さ1m)を300本備えている。このバイオリアクター10には、ボンベから水素ガスが供給されて中空糸2の内部を水素ガスが通過するようになっている。また、バイオリアクター10は恒温水槽12の液を循環させることにより一定温度(例えば20~30℃程度、本実施例では20℃に設定)になるようにしている。

【0033】本実験装置を用いて、本発明に係る水処理 方法による窒素化合物の分解処理能力を調査すべく、窒 素化合物NO<sub>3</sub>の分解(脱窒)実験を行った。

【0034】実験は、図10のバイオリアクターのうち下から流れる水素ガスを止め、上記の中空糸に水素ガス 圧力 $1.8 \ k \ g \ f \ / \ c \ m^2$ をかけた上で、被処理液

(1.2g/lのNaNO。(Nとして200mg/lに相当)、0.3g/lの $K_2$ HPO4、0.2g/lの $KH_2$ PO4、0.01g/lの $MgSO_4 \cdot 7H_2$ Oの混合溶液)を原料タンク13に投入し、実験装置内に一定量を流し込んで連続的に行った。実験では、時間の経過による脱窒速度(mgN/リットルーリアクター・h)を測定した。ここで、脱窒速度とは、バイオリアクター1リットル、1時間当たりの硝酸性窒素の脱窒量をいう。この測定は、スルファニルアミドとN-1-+フチルエチレンジアミンの共存下でジアゾ化カップリング反応を行い、生成するアゾ化合物の発色を波長540nmの吸光度を測定することにより定量し、あらかじめ作成しておい検量線より硝酸性窒素量を求めた。

【0035】[比較例]図10に記載のバイオリアクターを用い、中空糸膜のモジュールを取り除き、下部より18リットル/hの水素ガスを導入した。バイオリアクター容量の10容積%のアルギン酸ゲルビーズに独立栄養性細菌(Paracoccus denitrificans)を固定化し、エアレーターを設置して流動層型バイオリアクターを製作し、これを用いて図12記載の40実験装置を作製した。上記以外は実施例と同様の条件で、上述の脱窒速度を測定した。

【0036】実施例についての結果を図13に示す。脱窒速度は時間の経過と共に向上し、21日経過後には約280mgN/リットルーリアクター・hとなり、脱窒率は95%以上となっている。これは、非常に高い脱窒速度であり、中空糸2に担持された独立栄養性細菌が増殖し、非常に高い効率で人工排水中の硝酸性窒素を還元したことを示す。なお、実験開始からの14日間は、中空糸2に担持された細菌が馴致するのに要する期間であり、14日経過以降、脱窒率は一定に保たれた。

【0037】比較例のバイオリアクターの脱窒速度は12mgN/リットルーリアクター・hであった。表1に実施例と比較例との脱窒速度測定結果を比較して示す。 実施例のバイオリアクターの脱窒速度280mgN/リ ットルーリアクター・hは比較例の脱窒速度より遙かに 大きい値であった。

10

[0038]

〔表 1〕

	バイオリアクター	水素源	脱窒速度
実施例	中空糸型バイオリアクター	水素ガス	280
比較例	流動層型バイオリアクター	水素ガス	1 2

脱窒速度 [mgN/リットルーリアクター・h]

[0039]

【発明の効果】本発明に係るバイオリアクター素子は、独立栄養性細菌を固定化する担体として中空糸を用いているため、従来提案されていたビルゲーズを用いる方式に比べ、基質(硝酸性窒素を含む被処理水)及び水素ガス等の物質移動における流動抵抗を小さくでき、単位体積あたりの表面積が大きくなる。さらに、水素ガス供給の点においても、中空糸内部から水素ガスを拡散によって表面の菌体へ供給できるため、バブリングによる供給に比べ、水素分圧を高めることができる。これらの作用があいまって、硝酸性窒素の窒素ガスへの還元反応の著20しい効率化が期待される。

【0040】このようなバイオリアクター素子を含むモジュールを利用したバイオリアクターにより、従来から提案されているビルゲーズを用いる方式より高い効率で硝酸性窒素の窒素ガスへの変換ができる。これにより、本発明の主目的である、水素ガスを水素供与体とする独立栄養性細菌を用いて硝酸性窒素を還元するバイオリアクターを実用化することができる。

【0041】また、本発明に係る水処理方法は、前述のバイオリアクターを用いるので、硝酸性窒素から分子状 30 窒素への還元の際に、水素源として有機化合物を供給する必要は全くないので被処理水中のBOD、COD上昇の危険は全くなく、余剰汚泥発生量も少ないという長所をもっている。また、前述のごとく、中空糸表面での独立栄養性細菌の密度を高めることが可能となり、バイオリアクターの容積を小さくすることができる。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係るバイオリアクター素子の説明図で

10 ある。

【図2】本発明に係るモジュールの説明図である。

(b) は、(a) における I — I 断面図である。

【図3】本発明に係るモジュールの一例を示す図であ

る。(b)は、(a)におけるI—I断面図である。 【図4】本発明に係るモジュールの一例を示す図であ

る。 (b) は、 (a) における I — I 断面図である。

【図 5 】本発明に係るモジュールの一例を示す図であ

る。 (b) は、 (a) における I — I 断面図である。

【図6】本発明に係るモジュールの一例を示す図であ

る。(b)は、(a)における I — I 断面図である。 【図7】本発明に係るモジュールの一例を示す図であ

る。 (b) は、 (a) における I — I 断面図である。

【図8】本発明に係るモジュールの一例を示す図である。(b)は、(a)におけるIーI断面図である。

【図9】本発明に係るバイオリアクターの説明図であ

【図9】 本発明に係るハイオリアクターの説明図である。

【図10】本発明に係るバイオリアクターの一例を示す 図である。

【図11】本発明に係る水処理方法の概念図である。

【図12】本発明の実施例に係る実験装置の説明図である。

【図13】本発明の実施例による脱窒実験の結果を表すグラフである。

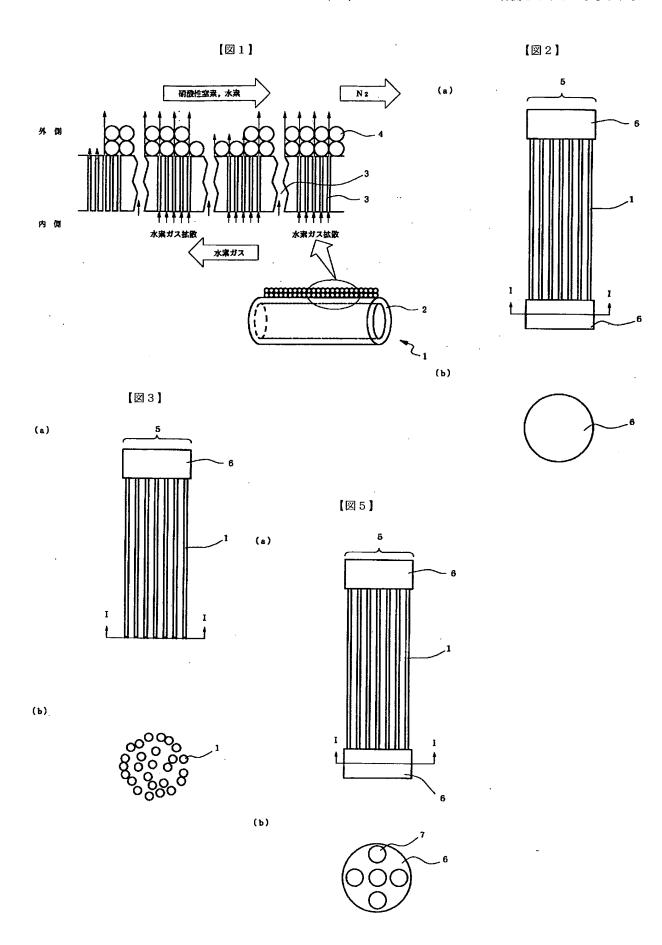
## 【符号の説明】

1:バイオリアクター素子、2:中空糸、3:細孔、

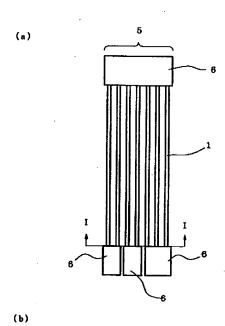
4: 微生物、5: モジュール、6: 固定部、7: 孔、

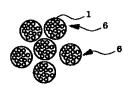
8:水素供給具、9:処理槽、10:バイオリアクタ

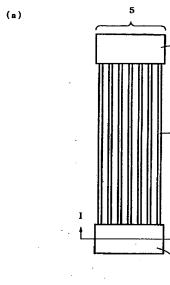
一、11:保護筒、12:恒温水槽、13:原料タンク



【図4】

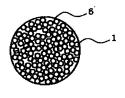




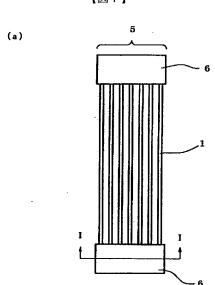


【図6】

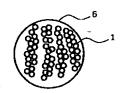
(ъ)

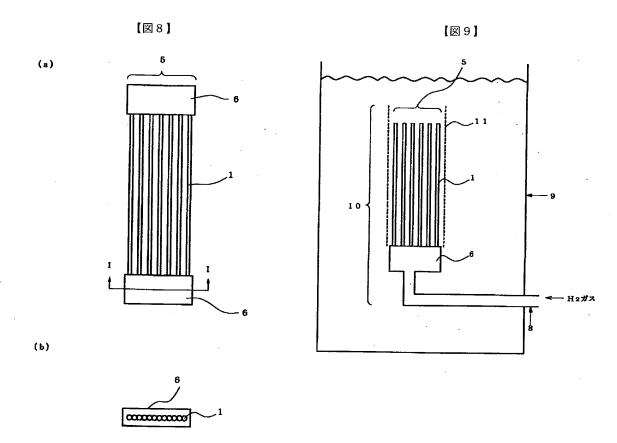


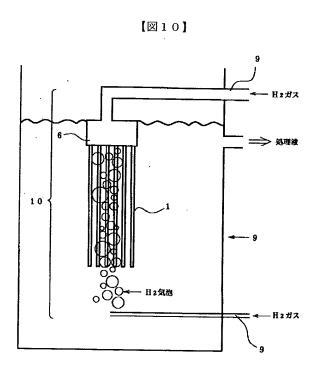
【図7】



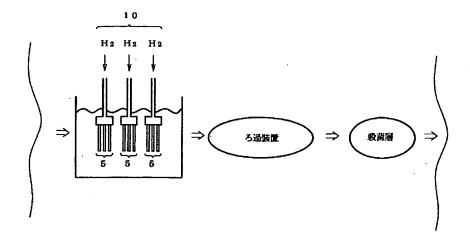
(ъ)



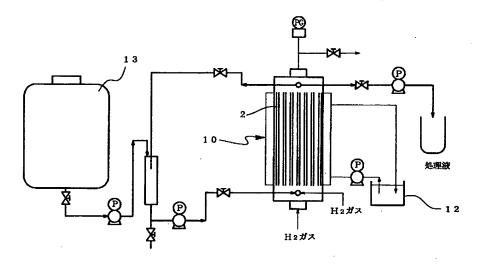




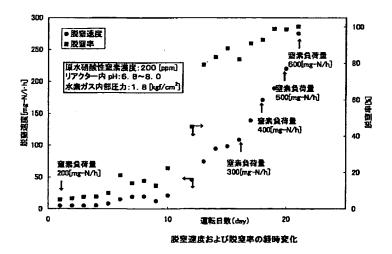
【図11】



【図12】



【図13】



## フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>

識別記号

FΙ

テーマコード(参考)

C 1 2 N 1/20

C 1 2 N 1/20

)

F

//(C 1 2 N 1/20 C 1 2 R 1:01)

C 1 2 R 1:01

(72)発明者 堀内 甫

岡山県倉敷市酒津1621番地 株式会社クラ

レ内

Fターム(参考) 4B029 AA27 BB02 CC03 CC12

4B065 AA01X AC20 BC22 BD24

CA56

4D003 AA01 BA02 CA02 CA08 CA10

DA07 DA18 EA10 EA15 EA19

EA30 EA40 FA01 FA04 FA10

4D006 GA41 HA03 JA02A JA02C

JA02Z JA13C JA18Z JB02

KA12 KA71 KA72 KB12 KB13

KB14 KB23 KB25 KC21 KD24

MA01 MA10 MA22 MA33 MB03

MB09 MC11 MC22 MC26 MC28

MC33 MC62 NA59 NA60 PA10

PB05 PB66 PC67 PC80

4D040 BB07 BB22 BB24 BB25 BB42